

## <sup>(19)</sup> RU <sup>(11)</sup> 2 170 477 <sup>(13)</sup> C1

(51) MOK<sup>7</sup> H 01 M 4/96, 4/06

### РОССИЙСКОЕ АГЕНТСТВО ПО ПАТЕНТАМ И ТОВАРНЫМ ЗНАКАМ

# (12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ

(21), (22) Заявка: 2000126419/09, 23.10.2000

(24) Дата начала действия патента: 23.10.2000

(46) Дата публикации: 10.07.2001

- (56) Ссылки: RU 2152670 C1, 10.07.2000. RU 2040832 C1, 27.07.1995. US 4161063 A, 17.07.1979. US 4066823 A, 03.01.1978. US 4107397 A, 15.08.1978.
- (98) Адрес для переписки: 123373, Москва, Светлогорский пр-д, 5, кв.53, Г.В.Серопяну

- (71) Заявитель: Серопян Георгий Ваграмович
- (72) Изобретатель: Серопян Г.В., Никольский И.А., Косарев В.Г., Федотов Г.П.
- (73) Патентообладатель:Серопян Георгий Ваграмович

#### (54) ГАЗОДИФФУЗИОННЫЙ ЭЛЕКТРОД И СПОСОБ ЕГО ИЗГОТОВЛЕНИЯ

(57) Реферат:

双

Изобретение относится к электротехнике и может быть использовано при изготовлении химических источников тока. Техническим результатом изобретения является повышение срока службы электрода. Согласно изобретению газодиффузионный электрод содержит активный слой, включающий 85 -98% активированного угля и сажи с удельной поверхностью 200 - 2000 м<sup>2</sup>/г при содержании от 5 до 90%. 1.5 высокомолекулярного полиэтилена и 0,5 - 5% полиизобутилена или бутилкаучука в качестве стабилизирующей добавки, гидрофобный слой, включающий 60 - 90% технического углерода, 5 - 25% высокомолекулярного полиэтилена, 3,5 - 10% графита и 1,5 - 5% полиизобутилена или бутилкаучука в качестве стабилизирующей добавки, и токоотводящую сетку. Активный слой может дополнительно содержать катализатор в количестве от 0,1 до 5% от содержания в активном слое сажи. При этом в качестве катализатора может быть взят металл из группы, содержащей серебро, металлы платиновой группы, их смеси или сплавы на их основе. Токоотводящая сетка может быть расположена между активным и гидрофобным слоями, в активном слое или гидрофобном слое. В качестве токоотводящей сетки может быть взята подпрессованная на

20 - 80% от исходной толщины никелевая сетка. Пористость гидрофобного слоя выше пористости активного слоя, при этом общая пористость электрода составляет 60 - 80%. Размер пор в активном и гидрофобном слоях находится в диапазоне 0,001 - 1 мкм. Способ изготовления газодиффузионного электрода включает приготовление активированного сажи, угля, высокомолекулярного полиэтилена. индустриального масла и стабилизирующей добавки для активного слоя и смеси технического углерода, графита, высокомолекулярного полиэтилена стабилизирующей добавки для гидрофобного слоя при указанных выше соотношениях, смеси гранулируют, прессуют полученные гранулированные смеси на одну или разные стороны токоотводящей сетки повышенной температуре, экстрагируют масло электрода растворителем, подпрессовывают электрод при температуре от 110 до 170°C и удельном давлении от 100 до 500 кг/см<sup>2</sup>. Перед приготовлением смеси сажа может пропитываться глицерином при массовом соотношении глицерина и сажи от 0,3 до 1, при этом после экстрагирования масла электрод отмывают водой от глицерина и подвергают сушке. 2 с. и 18 з.п. ф-лы.



## <sup>(19)</sup> RU <sup>(11)</sup> 2 170 477 <sup>(13)</sup> C1

(51) Int. Cl. 7 H O1 M 4/96, 4/06

#### RUSSIAN AGENCY FOR PATENTS AND TRADEMARKS

### (12) ABSTRACT OF INVENTION

(21), (22) Application: 2000126419/09, 23.10.2000

(24) Effective date for property rights: 23.10.2000

(46) Date of publication: 10.07.2001

(98) Mail address: 123373, Moskva, Svetlogorskij pr-d, 5, kv.53, G.V.Seropjanu

- (71) Applicant: Seropjan Georgij Vagramovich
- (72) Inventor: Seropjan G.V., Nikol'skij I.A., Kosarev V.G., Fedotov G.P.
- (73) Proprietor: Seropjan Georgij Vagramovich

#### (54) GAS-DIFFUSION PLATE AND ITS MANUFACTURING PROCESS

(57) Abstract:

双

0

FIELD: electrical engineering; chemical power supplies. SUBSTANCE: gas-diffusion plate has active layer including 85-98% of activated carbon and carbon black with specific surface area of 200-2000 sq.m/g, black- carbon content being 5 to 90%, 1.5-10% of high-molecular polyethylene, and 0.5-5% of polyisobutylene or butyl rubber as additive; water-repelling including 60-90% of commercial-grade carbon, polyethylene, 5- 25% of high-molecular graphite, and 3.5-10% of 1.5-5% of polyisobutylene or butyl rubber grid. Active stabilizing additive; terminal layer may have, in addition, catalyst in the amount of 0.1 to 5% of its carbon black content. Used as catalyst may be metal of containing group, platinum-group metals, their mixtures or alloys based on them. Terminal grid may be placed between active and water-repelling layers or inside active or water-repelling layer. Used as terminal grid may be nickel grid compressed to 20-80% of initial thickness. Porosity of water-repelling layer is higher than that of active layer; total porosity of plate is active Pore size in water-repelling layers is between 0.001 and 1 mcm. Plate manufacturing process includes mixing up activated carbon, carbon black, high-molecular polyethylene, and stabilizing additive for active layer and also mixing up carbon, commercial-grade graphite, high-molecular polyethylene, and stabilizing water-repelling additive for layer above-mentioned proportions, granulating the mixtures, press-fitting granulated mixtures obtained in the process on one or both sides of terminal grid at high temperature, extracting oil from plate by means solvent, and compressing the plate at 110-170 C and at specific pressure of 100-500 kg/sq. cm. Prior to mixing up ingredients carbon black may be impregnated with glycerin, mass content of both being 0.3 to 1; upon oil extraction plate is rinsed to remove glycerin and dried out. EFFECT: extended service life of plate. 20 cl

Изобретение относится к области электротехники и может быть использовано при производстве газодиффузионных электродов для первичных химических источников тока (ХИТ), например для металловоздушных ХИТ.

Известен газодиффузионный электрод для ХИТ, содержащий активный слой из активированного угля и высокомолекулярного полиэтилена, гидрофобный слой, состоящий из технического углерода и высокомолекулярного полиэтилена, и токоотводящую сетку (см. патент РФ 2040832, кл. Н 01 М 4/86, 4/96, 1995).

Недостатком известного электрода является недостаточный срок службы, связанный с деструкцией гидрофобного слоя и промоканием электрода.

известных газодиффузионных электродов для ХИТ наиболее близким по существенных совокупности является газодиффузионный электрод для химического источника тока, содержащий активный слой из активированного угля, высокомолекулярного полиэтилена стабилизирующей добавки, гидрофобный слой, состоящий из технического углерода, высокомолекулярного полиэтилена стабилизирующей добавки и токоотводящую сетку (см. патент РФ 2152670, кл. Н 01 М 4/86, 4/96, 10.07.2000).

Недостатком известного электрода является невысокие электрохимические характеристики.

Известен способ изготовления газодиффузионного электрода, при котором на токопроводящую подложку наносят с двух сторон смесь углеродного материала и полиэтилена (см. патент СССР N 357774, кл. Н 01 M 4/96, 12.01.1973)

Недостатком указанного способа изготовления является низкие удельные электрические характеристики.

双

Из известных способов изготовления газодиффузионных электродов наиболее близким по совокупности существенных признаков является способ изготовления газодиффузионного электрода, при котором готовят смесь активированного угля, высокомолекулярного полиэтилена индустриального масла для активного слоя, технического углерода, высокомолекулярного полиэтилена индустриального масла для гидрофобного слоя, прессуют указанные смеси на разные стороны токоотвода при повышенной температуре и экстрагируют масло из электрода растворителем (см. патент РФ 2040832, кл. Н 01 М 4/86, 4/96, 1995).

Недостатком указанного способа является низкий срок службы изготовленных электродов.

Задачей изобретения является создание газодиффузионного электрода для ХИТ и способа его изготовления, обеспечивающего изготовление электродов, обладающих повышенным сроком службы.

Указанный технический результат достигается тем, газодиффузионый электрод содержит активный слой, состоящий из активированного угля, высокомолекулярного полиэтилена и стабилизирующей добавки, гидрофобный слой, состоящий из технического углерода, высокомолекулярного полиэтилена и стабилизирующей добавки, и токоотводящую

сетку. При этом активный слой электрода дополнительно содержит сажу с удельной поверхностью 200-2000 м<sup>2</sup>/г при следующем компонентов соотношении (мас.%): активированный уголь плюс сажа 85-98 при содержании сажи от 5 до высокомолекулярный полиэтилен 1,5-10 и стабилизатор 0,5-5, гидрофобный слой электрода дополнительно содержит графит при следующем соотношении компонентов (мас.%): технический углерод высокомолекулярный полиэтилен 5-25, графит 3,5-10 и стабилизирующая добавка 1,5-5. Введение сажи в активный слой повышает площадь активной поверхности реакции электрода, введение графита в гидрофобный слой повышает его электропроводность и гидрофобность. Указанные факторы способствуют повышению электрохимических характеристик электрода. Соотношение компонентов в активном и гидрофобном слоях выбраны на электрода основании экспериментальных данных и являются оптимальными.

Целесообразно, чтобы в качестве стабилизирующей добавки был взят полиизобутилен или бутилкаучук. Использование в качестве стабилизирующей добавки полиизобутилена или бутилкаучука позволяет повысить физико-механические характеристики электродов и предотвратить их промокание из-за растрескивания.

Целесообразно, чтобы активный слой газодиффузионного электрода дополнительно содержал катализатор в количестве от 0,1 до 5% от содержания в активном слое сажи. При этом в качестве катализатора может быть использован металл из группы, содержащей серебро, металлы платиновой группы, их смеси или сплавы на их основе. Введение катализатора в активный слой электрода электрохимическую активность повышает электрода. Содержание катализатора является оптимальным. При содержании катализатора менее 0,1% эффект повышения активности электрода незначителен. При содержании катализатора более значительно возрастает стоимость электрода.

Токоотводящая сетка может располагаться между активным и гидрофобным слоями, в активном слое или в гидрофобном слое. Место расположения токоотводящей сетки в электроде определяется конструкцией ХИТ и его назначением.

Целесообразно в качестве токоотводящей сетки использовать подпрессованную на 20-80% от исходной толщины никелевую сетку. Подпрессовывание сетки повышает прочность токоотвода и уменьшает его толщину, что позволяет повысить механическую прочность электрода и уменьшить его габаритные размеры.

Целесообразно, чтобы пористость гидрофобного слоя электрода была выше пористости активного слоя при общей пористости электрода от 60 до 80%. Более высокая пористость гидрофобного слоя облегчает доступ кислорода воздуха в зону реакции, что способствует повышению характеристик электрода. Указанный диапазон пористости электрода обеспечивает требуемые электрические и механические характеристики электрода. При пористости 60% активной мала площадь поверхности электрода, что снижает

характеристики, при пористости выше 80% электрод обладает недостаточной механической прочностью.

Целесообразно, чтобы размер пор в активном и гидрофобном слоях газодиффузионного электрода находился в диапазоне 0,001-1 мкм. Указанный диапазон размеров пор электрода обеспечивает газозапорные свойства активного слоя электрода и необходимую проницаемость гидрофобного слоя для кислорода воздуха, диффундирующего через гидрофобный слой в зону реакции.

Что касается способа изготовления газодиффузионного электрода, то указанный технический результат достигается за счет изготовления что в способе газодиффузионного электрода, при котором готовят смесь активированного угля, высокомолекулярного полиэтилена, индустриального масла и стабилизирующей добавки для активного слоя и смесь технического углерода, высокомолекулярного полиэтилена и стабилизирующей добавки для гидрофобного слоя, прессуют указанные смеси на одну или разные стороны токоотвода при повышенной температуре, экстрагируют масло из электрода растворителем, в смесь для активного слоя дополнительно вводят сажу с удельной поверхностью 200-2000 м  $^{2}$ /г, а в смесь для гидрофобного слоя графит, а перед прессованием указанные смеси токоотводящую сетку гранулируют. Операция гранулирования смесей позволяет удалить из смеси избыточное масло и упрощает технологию изготовления электродов, поскольку смесь можно изготавливать в запас.

Целесообразно, чтобы в качестве стабилизирующей добавки был взят полиизобутилен или бутилкаучук. Введение стабилизирующей добавки повышает ресурс электрода.

Целесообразно после экстрагирования масла электрод подпрессовывать при повышенной температуре в диапазоне от 110 до 170°С и удельном давлении в диапазоне от 100 до 500 кг/см². Подпрессовывание электрода при указанных параметрах повышает прочность и ресурсные характеристики электрода.

フロ フロ

Целесообразно перед приготовлением смеси сажу пропитывать глицерином при массовом соотношении глицерина и сажи от 0,3 до 1. Пропитка сажи глицерином предотвращает заполнение мелких пор индустриальным масло, что способствует увеличению характеристик электрода за счет увеличения удельной поверхности.

Целесообразно после экстрагирования масла электрод отмывать водой от глицерина и подвергать сушке. Указанные операции способствуют повышению характеристик электрода.

Проведенный анализ уровня техники показал, что заявленная совокупность существенных признаков, изложенная в формуле изобретения, неизвестна. Это позволяет сделать вывод о ее соответствии критерию "новизна".

Для проверки соответствия заявленного изобретения критерию "изобретательский уровень" проведен дополнительный поиск известных технических решений с целью выявления признаков, совпадающих с

отличительными от прототипа признаками заявленного технического решения. Установлено, что заявленное техническое решение не следует явным образом из известного уровня техники. Следовательно, заявленное изобретение соответствует критерию "изобретательский уровень". Сущность изобретения поясняется примером практической реализации.

Пример практической реализации

Изготовлен газодиффузионный электрод (катод) для ХИТ на основе никелевой сетки в качестве токоотвода. Исходная никелевая сетка толщиной 0,42 мм была подкатана до толщины 0,28-0,32 мм. Активную массу для активного слоя готовят из смеси 45% активированного угля, 45% сажи с удельной поверхностью 300  $M^2/\Gamma$ . высокомолекулярного полиэтилена и 2% полиизобутилена В качестве добавки. В стабилизирующей смесь добавляют индустриальное масло перемешивают до получения необходимой консистенции смеси. Массу для гидрофобного слоя готовят из смеси 67% технического углерода, 8% графита, высокомолекулярного полиэтилена и 4% полиизобутилена качестве стабилизирующей добавки. В смесь добавляют индустриальное масло перемешивают до получения требуемой консистенции смеси. Полученные смеси гранулируют, например путем пропускания через экструдер. Гранулированные смеси прессуют на разные стороны токоотводящей сетки при температуре 150°С. Из полученного электрода экстрагируют масло путем отмывки растворителе, например четыреххлористом После углероде. экстрагирования масла электрод подпрессовывают посредством каландрирования при температуре 120 °C и удельном давлении 400 кг/см<sup>2</sup>. Изготовленные электроды в ячейках ставились на ресурсные испытания, по ускоренной методике. Она включала испытания под нагрузкой 20 мA/см $^2$  в течение 7 часов и 17 часов при напряжении разомкнутой цепи. Время работы в таком режиме составило 700 часов. Время работы электродов, изготовленных

На основании вышеизложенного можно сделать вывод, что заявленные газодиффузионный электрод и способ его изготовления могут быть реализованы с достижением заявленного технического результата, т.е. они соответствуют критерию "промышленная применимость".

прототипу, не превышало 200 часов.

### Формула изобретения:

Газодиффузионный электрод. содержащий активный слой, состоящий из активированного угля, высокомолекулярного полиэтилена и стабилизирующей добавки, гидрофобный слой, состоящий из технического углерода, высокомолекулярного полиэтилена и стабилизирующей добавки, и токоотводящую сетку, отличающийся тем, что активный слой электрода дополнительно содержит сажу с удельной поверхностью  $200 - 2000 \text{ м}^2/\text{г}$  при следующем соотношении компонентов, мас. %: активированный уголь плюс сажа 85 - 98 при содержании сажи от 5 до 90%, высокомолекулярный полиэтилен 1,5 - 10 и стабилизирующая добавка 0,5

- гидрофобный слой электрода дополнительно содержит графит при следующем соотношении компонентов, мас.%: технический углерод 60 90, высокомолекулярный полиэтилен 5 25, графит 3,5 10 и стабилизирующая добавка 1,5 5.
- 2. Газодиффузионылй электрод по п.1, отличающийся тем, что в качестве стабилизирующей добавки взят полиизобутилен.
- 3. Газодиффузионный электрод по п.1, отличающийся тем, что в качестве стабилизирующей добавки взят бутилкаучук.
- 4. Газодиффузионный электрод по п.1, отличающийся тем, что активный слой дополнительно содержит катализатор в количестве от 0,1 до 5% от содержания в активном слое сажи.
- 5. Газодиффузионный электрод по п.4, отличающийся тем, что в качестве катализатора взят металл из группы, содержащей серебро, металлы платиновой группы, их смеси или сплавы на их основе.
- 6. Газодиффузионный электрод по п.1, отличающийся тем, что токоотводящая сетка расположена между активным и гидрофобным слоями.
- 7. Газодиффузионный электрод по п.1, отличающийся тем, что токоотводящая сетка расположена в активном слое.
- 8. Газодиффузионный электрод по п.1, отличающийся тем, что токоотводящая сетка расположена в гидрофобном слое.
- 9. Газодиффузионный электрод по любому из пп.1, 6 8, отличающийся тем, что в качестве токоотводящей сетки взята подпрессованная никелевая сетка.
- 10. Газодиффузионный электрод по любому из пп.1, 6 9, отличающийся тем, что никелевая сетка подпрессована на 20 80% от исходной толщины.
- 11. Газодиффузионный электрод по п.1, отличающийся тем, что пористость гидрофобного слоя выше пористости активного слоя.

フリ マイ・ファイン マイ・ファイン アイ・ファイン アイ・ファイ・ファイ アイ・ファイ アイ・フェー アイ・ファイ アイ・ファイ アイ・ファイ アイ・ファイ アイ・ファイ アイ・ファイ アイ・ファイ アイ・ファイ アイ・ファイン アイ・ファイン アイ・ファイン アイ・フェー アイ・ファイン アイ・フィー アイ・フィー アイ・ファイン アイ・フィー アイ・ファイ・ファイ アイ・ファイン アイ・ファイン アイ・フィー アイ・ファイン アイ・ファイン アイ・ファイン アイ・ファイン アイ・ファイン アイ・ファイン アイ・ファイン アイ・ファイ アイ・ファイ アイ・ファイ アイ・ファ アイ・ア

- 12. Газодиффузионный электрод по п.1, отличающийся тем, что размер пор в активном и гидрофобном слоях находится в диапазоне 0,001 1 мкм.
- 14 Способ изготовления газодиффузионного электрода, при котором готовят смесь активированного угля, высокомолекулярного полиэтилена, индустриального масла и стабилизирующей добавки для активного слоя и смесь технического углерода, высокомолекулярного полиэтилена и стабилизирующей добавки для гирофобного слоя, прессуют указанные смеси на одну или разные стороны токоотводящей повышенной сетки при температуре. экстрагируют масло из электрода растворителем, отличающийся тем, что в смесь для активного слоя дополнительно вводят сажу с удельной поверхностью 200 -2000 м<sup>2</sup>/г, а в смесь для гидрофобного слоя графит, а перед прессованием токоотводящую сетку указанные смеси гранулируют.
  - 15. Способ по п. 14, отличающийся тем, что в качестве стабилизирующей добавки взят полиизобутилен.
- 16. Способ по п. 14, отличающийся тем, что в качестве стабилизирующей добавки взят бутилкаучук.
- 17. Способ по п.14, отличающийся тем, что после экстрагирования масла электрод подпрессовывают при повышенной температуре.
- 18. Способ по п. 17, отличающийся тем, что подпрессовывание электрода проводят при температуре от 110 до 170°С и удельном давлении от 100 до 500 кг/см<sup>2</sup>.
- 19. Способ по п. 17, отличающийся тем, что перед приготовлением смеси сажа пропитывается глицерином при массовом соотношении глицерина и сажи от 0,3 до 1.
- 20. Способ по п.17, отличающийся тем, что после экстрагирования масла электрод отмывают водой от глицерина и подвергают сушке.

45

40

20

30

50

55

60